

SOLID POLYMER TYPE FUEL BATTERY

Publication number: WO0223655

Publication date: 2002-03-21

Inventor: ITO HIDEKI (JP); KOBAYASI TOSHIRO (JP); MORIGA TAKUYA (JP); YAMADA AKIHIKO (JP)

Applicant: MITSUBISHI HEAVY IND LTD (JP); ITO HIDEKI (JP); KOBAYASI TOSHIRO (JP); MORIGA TAKUYA (JP); YAMADA AKIHIKO (JP)

Classification:

- **international:** H01M4/86; H01M8/02; H01M8/10; H01M4/86; H01M8/02; H01M8/10; (IPC1-7): H01M8/02; H01M4/86; H01M8/10

- **European:** H01M4/86B; H01M8/02C2K2

Application number: WO2001JP08103 20010918

Priority number(s): JP20000282397 20000918

Also published as:

EP1326298 (A1)
 US7001688 (B2)
 US2003008200 (A1)
 MXPA02004950 (A)
 CN1393042 (A)

[more >>](#)

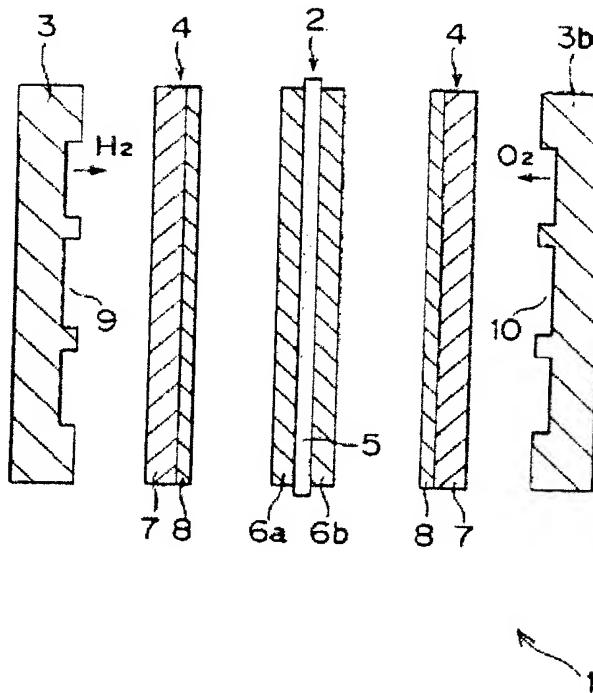
Cited documents:

JP9265992
 JP62073570
 JP2226663
 JP8045517

[Report a data error here](#)

Abstract of WO0223655

A fuel battery of the solid polymer type which comprises a cell having a solid polymer film, separators between which the cell is sandwiched, and diffusion layers which are disposed between the cell and the respective separators and which each comprises a substrate made of a conductive porous material and a slurry layer formed on the substrate, wherein each diffusion layer has, formed on at least part thereof, a gas barrier for inhibiting gas permeation toward the main side.



Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2002年3月21日 (21.03.2002)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 02/23655 A1

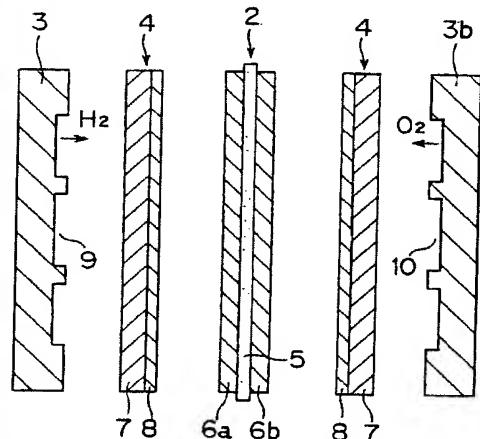
(51) 国際特許分類: H01M 8/02, 8/10, 4/86
 (21) 国際出願番号: PCT/JP01/08103
 (22) 国際出願日: 2001年9月18日 (18.09.2001)
 (25) 国際出願の言語: 日本語
 (26) 国際公開の言語: 日本語
 (30) 優先権データ:
 特願2000-282397 2000年9月18日 (18.09.2000) JP
 (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 三菱重工業株式会社 (MITSUBISHI HEAVY INDUSTRIES, LTD.) [JP/JP]; 〒100-8315 東京都千代田区丸の内二丁目5番1号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および
 (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 伊藤栄基 (ITO, Hideki) [JP/JP]; 小林敏郎 (KOBAYASHI, Toshiro) [JP/JP]; 森賀卓也 (MORIGA, Takuya) [JP/JP]; 〒733-8553 広島県広島市西区鏡音新町四丁目6番22号 三菱重工業株式会社 広島研究所内 Hiroshima (JP); 山田昭彦 (YAMADA, Akihiko) [JP/JP]; 〒236-8515 神奈川県横浜市金沢区幸浦一丁目8番地1 三菱重工業株式会社 基盤技術研究所内 Kanagawa (JP).
 (74) 代理人: 奥山尚一, 外 (OKUYAMA, Shoichi et al.); 〒107-0052 東京都港区赤坂3丁目2番12号 赤坂ノアビル8階 Tokyo (JP).
 (81) 指定国(国内): AU, BR, CA, CN, IN, JP, KR, MX, US.

[続葉有]

(54) Title: SOLID POLYMER TYPE FUEL BATTERY

(54) 発明の名称: 固体高分子型燃料電池



(57) Abstract: A fuel battery of the solid polymer type which comprises a cell having a solid polymer film, separators between which the cell is sandwiched, and diffusion layers which are disposed between the cell and the respective separators and which each comprises a substrate made of a conductive porous material and a slurry layer formed on the substrate, wherein each diffusion layer has, formed on at least part thereof, a gas barrier for inhibiting gas permeation toward the main side.

(57) 要約:

WO 02/23655 A1

固体高分子膜を有したセルと、このセルを両側から挟むセパレータと、前記セルとセパレータ間に配置された、導電性多孔質材料からなる基材および該基材上のスラリー層を有した拡散層とを具備し、前記拡散層の少なくとも一部に、主面方向へのガスの透過を阻止するガスバリアを設けた固体高分子型燃料電池である。



(84) 指定国(広域): ヨーロッパ特許 (CH, DE, FR, GB, IT). 2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

添付公開書類:
— 国際調査報告書

明 細 書

固体高分子型燃料電池

5 技術分野

本発明は、固体高分子型燃料電池（P E F C : P o l y m e r E l e c r o l y t e F u e l C e l l）の改良に関する。

背景技術

10 従来、固体高分子型燃料電池では、セルと、このセルの両端側に配置されてセルを挟持する二つのセパレータと、前記セルとセパレータ間に配置された拡散層とから構成されている。

前記セルは、固体高分子膜と、該膜の両側に配置された二つの反応層とから構成されている。前記拡散層は、カーボンペーパと、この一方の主面に形成されたスラリー層とから構成されている。前記セパレータのセル側には水素ガスを流すための溝が形成され、他方のセパレータには空気を流すための溝が形成されている。

しかしながら、従来の固体高分子型燃料電池用セパレータによれば、燃料ガス、酸化ガスが上記拡散層をバイパスして溝の形状通りに流れず、セル中に水が滞留し、その部分で反応面積が少なくなり、発電性能劣化の原因となったりセルが破損する恐れがあるという問題があった。

また一方、セル内に滞留する水を除去するために、セパレータでの圧力損失を十分大きく取り、対流する水をガス中に気体として取込む方法が採用されていた。この方法によると固体高分子型燃料電池でのガス圧力損失が大きくなりガスを供給するコンプレッサ等の補器の動力が大きくなり、

燃料電池システム全体としての発電効率が低下する問題があった。

発明の開示

本発明はこうした事情を考慮してなされたもので、拡散層の少なくとも一部に、正面方向へのガスの透過を阻止するガスバリアを設けた構成とすることにより、セル中に水が滞留するのを回避し、セル面内で均一な発電をなしえるとともに、除水も効率的になしえる固体高分子型燃料電池を提供することを目的とする。

本発明によれば、固体高分子膜を有したセルと、このセルを両側から挟むセパレータと、前記セルとセパレータ間に配置された導電性多孔質材料からなる基材および該基材上のスラリー層を有した拡散層とを具備し、前記拡散層の少なくとも一部に、正面方向へのガスの透過を阻止するガスバリアを設けた固体高分子型燃料電池が提供される。

本発明は、その好適な実施の形態において、前記ガスバリアを、ガスバリア形成予定部に対応する前記基材を除去し、その除去部分に配置されたゴムまたは樹脂によるガス不透過材料層としている。

また、本発明は、その好適な実施の形態において、前記ガスバリアを、ガスバリア形成予定部に対応する前記セパレータを周囲より厚み方向に突出させて突出部を形成し、この突出部に位置する前記導電性多孔材料層を周囲と比べ圧縮して得られる圧縮層としている。

また、本発明は、その好適な実施の形態において、前記ガスバリアを、ガスバリア形成予定部に対応する前記セパレータに含浸して気密性を保持した樹脂含浸層としている。

また、本発明は、その好適な実施の形態において、前記導電性多孔質材料からなる基材を、カーボンペーパ、カーボンクロス、カーボン不織布の

いずれかにフッ素樹脂を撥水処理してなる構成としている。

また、本発明は、その好適な実施の形態において、前記拡散層の界面エネルギーは、 $1 \times 10^{-3} \sim 5 \times 10^{-2} \text{ N/m}$ としている。

また、本発明は、その好適な実施の形態において、供給される燃料ガス流量を ($L_A [1/\text{min}]$) と固体高分型燃料電池で圧力損失 ($\Delta P_A [kgf/cm^2]$) とが $\Delta P_A \leq 0.2 \times L_A$ の範囲にあり、同様にこの固体高分子型燃料電池に供給される酸化剤ガス流量 ($L_c [1/\text{min}]$) と固体高分型燃料電池で圧力損失 ($\Delta P_c [MPa]$) とが $\Delta P_c \leq 0.1 \times L_c$ の範囲としている。

さらに、本発明は、その好適な実施の形態において、前記拡散層のガス透過速度を $1.5 \times 10^{-4} \text{ cm/s/Pa}$ 以上としている。

さらに、本発明は、その好適な実施の形態において、前記拡散層の平均気孔率を、45%以上としている。

15 図面の簡単な説明

図1は、本発明に係るPEFCの概略を説明する断面分解図である。

図2は、図1のPEFCを構成するセルの反応状況を示す概念図である。

図3は、PEFC用セパレータの概略を示す平面図である。

図4は、本発明の実施の形態（その1）に係るPEFCの概念的断面図である。

図5は、本発明の実施の形態（その2）に係るPEFCの概念的断面図である。

図6は、本発明の実施の形態（その3）に係るPEFCの概念的断面図である。

図7は、空気極のガス流量と圧力損失の相関を示すグラフである。

図 8 は、燃料極のガス流量と圧力損失の相関を示すグラフである。

図 9 は、圧力損失と発電電圧の相関を示すグラフである。

図 10 は、拡散層のガス透過速度と発電電圧の関係を示すグラフである。

図 11 は、拡散層の平均気孔率と発電電圧の関係を示すグラフである。

5 発明を実施するための最良の形態

以下、図面を参照して本発明の実施の形態を説明する。しかしながら、かかる実施の形態は、本発明の技術的範囲を限定するものではない。

まず、本発明の一実施の形態に係る固体高分子型燃料電池（P E F C）について図面を参照して説明する。

10 実施の形態（その 1）

図 1 は、本発明に係る固体高分子型燃料電池の一実施の形態を断面でかつ分解して示す。この燃料電池 1 は、セル 2 と、このセル 2 の両端側に配置されてセル 2 を挟持するセパレータ 3 a、3 b と、前記セル 2 とセパレータ 3 a、3 b 間に配置された拡散層 4 とから構成されている。

15 前記セル 2 は、固体高分子膜 5 と、該膜 5 の両側に配置された反応層 6 a、6 b とから構成されている。

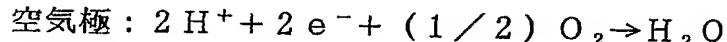
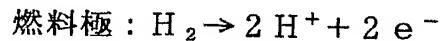
固体高分子膜 5 は、例えば、パーフルオロスルホン酸の素材で形成されている膜である。

前記拡散層 4 は、基材とも呼ばれるものである。カーボンペーパ 7 と、この一方の主面に形成されたスラリー層 8 とから構成されている。なお、このカーボンペーパは、導電性多孔質材料であれば、他にカーボンクロス、カーボン不織布のいずれかで良い。スラリー層 8 は、例えば、親水性カーボンブラック、疎水性カーボンブラック及びポリテトラフルオロエチレンをソルベントナフサ中で混合してスラリーとしてこれを拡散層表面にスクリーン印刷し焼成して形成される層である。

一方、前記セパレータ 3 a のセル側には水素ガスを流すための溝 9 を形成している。他方のセパレータ 3 b には空気を流すための溝 10 を形成している。

前記セル 2 を更に具体的に説明すると、図 2 に示すように、反応層 6 a 5 は、燃料極 1 1 と固体高分子膜 5 側に形成された例えば白金触媒層 1 2 とから構成し、他方の反応層 6 b は空気極 1 3 と固体高分子膜 5 側に形成された白金触媒層 1 2 とから構成している。燃料極 1 1 は、白金系合金触媒をカーボンブラックに担持したものと電解質高分子等の素材で構成し、空気極 1 3 は白金合金触媒をカーボンブラックに担持したものと電解質高分子等の素材で構成している。

ここで、前記燃料極 1 1 、空気極 1 3 では、下記のような反応が行われる。



15 ところで、こうした構成の燃料電池において、前記セパレータ 3 a (または 3 b) の平面形状は図 3 に示すように溝を蛇行状に形成した形状としている。つまり、こうした形状のセパレータでは、例えば水素ガスをセパレータ 3 a のコーナー部の導入穴 1 4 から対角線上の排出用穴 1 5 へ送る際に、ガスの流速を上げて溝に介在する水を吹き飛ばすため、例えば 3 回 20 程度ガスの向きを変える構成としている。

ここで、燃料ガス、酸化ガスが拡散層をバイパスして溝の形状通りに流れず、図 3 中の点線のように流れ、セル中に水が滞留し、その部分で反応面積が少なくなり、発電性能劣化を起こしたりしないようにする必要がある。

25 本実施の形態では、このような問題を引き起こさない構造を採用してい

る。

図4 (A)、(B)を参照する。ここで、前記したように、図4 (A)は本発明の実施の形態(その1)に係るPEFC(固体高分子型燃料電池)の一構成である拡散層の概略平面図、図4 (B)は図4 (A)のX-X線5に沿う断面図を示している。但し、図4 (A)ではスラリー層を図示していない。

拡散層を構成するカーボンペーパ21では、セパレータ3a(または3b)の蛇行状の溝(図示せず)に沿ってスリット22を形成している。このカーボンペーパ21のスリット22には、例えばゴムからなるガスバリア1023を設けている。

前記ガスバリア23を含むカーボンペーパ21上にはスラリー層8が形成され、カーボンペーパー21とにより拡散層24が形成されている。ここで、ガスバリア23は常温硬化型のシリコンゴムシール材からなっている。

15 本実施の形態では、スリットが形成されたカーボンペーパーに液状のシリコンゴムを流し込み、所定の厚さとなるように成形、室温で硬化させることでガスバリアを作製する。

実施の形態(その1)によれば、セパレータ3a(または3b)の蛇行状の溝(図示せず)に沿ってカーボンペーパ(基材)21にスリット22を形成し、このスリット22に例えばゴムからなるガスバリア23を設けた構成となっている。このため、セパレータをセルに組み込んでガスを蛇行状に流す際、ガスのバイパスをなくし、セパレータの溝に沿って流すことができる。したがって、セル中に水が滞留することなく、セルの面内で均一な発電を行うことができる。また、セル面内で均一なガス流速を得ることができる、除水を効率良く行うことができる。

実施の形態（その2）

図5を参照する。図5は本発明の実施の形態（その2）に係るP E F Cの一構成である拡散層およびセパレータの概略断面図を示す。この実施の形態で、セパレータ25は、周囲と比べ厚み方向に突出した突出部26を有する。該突出部26に対応したカーボンペーパ27は、周囲のそれと比べて圧縮して形成された圧縮層（ガスバリア）28を有している。前記圧縮層28を含む前記カーボンペーパ27上には、スラリー層8が形成されている。

本実施の形態（その2）によれば、セパレータ25の所定の位置に周囲と比べ厚み方向に突出した突出部26を形成し、この突出部26に対応したカーボンペーパー27に圧縮層28を形成した構成となっている。このため、実施の形態（その1）と同様、セル中に水が滞留することなく、セルの面内で均一な発電を行うことができ、またセル面内で均一なガス流速を得ることができ、除水を効率良く行うことができる。

実施の形態（その3）

図6を参照する。図6は本発明の実施の形態（その3）に係るP E F Cの一構成である拡散層の概略断面図を示す。この実施の形態では、ガスバリアは、基材であるカーボンペーパー21のガスバリア形成予定部に樹脂、例えばが含浸された樹脂含浸層（ガスバリア）31として形成している。ここで、樹脂含浸層31は気密性を有し、ガスが通り抜けないようになっている。前記樹脂含浸層31を含むカーボンペーパー21上にはスラリー層8が形成されている。

この実施の形態（その3）によれば、ガスバリア形成予定部に対応するカーボンペーパー25に気密性を有した樹脂含浸層31が形成された構成となっている。このため、実施の形態（その1）と同様、セル中に水が滞

留することなく、セルの面内で均一な発電を行うことができ、またセル面内で均一なガス流速を得ることができ、除水を効率良く行うことができる。

実施例に基づく諸条件の検討

本発明者らは、本発明に係る固体高分子型燃料電池について、その適切な運転条件等について、以下に示す実施例、比較例について、さらに検討を行った。

実施例 1 及び 2、比較例 1 及び 2

実施例 1、2 は空気極側の拡散層にシリコーン製ポリマーをガスバリアとして形成したものを用いて、実施例 1 はセパレータの溝本数を 23 パスとしたもの、実施例 2 はセパレータの溝本数を 30 パスとしたものを用いて燃料電池を製作した。

比較例 1、2 は拡散層をそのまま用いて、比較例 1 はセパレータの溝本数を 10 パス、比較例 2 は溝本数を 1 パスとしたものを用いて燃料電池を製作した。

図 7 は空気極側のガス流量と圧力損失の関係を示したグラフである。比較例 1 と比較例 2 とを比較すると、溝本数を 10 パスから 1 パスにすることによって圧力損失が一定流量に対して劇的に大きくなり、これによって水を除去することができる。

ここで、比較例 1 と実施例 1、2 を比較するとセパレータの溝本数による圧力損失の差異がない。これは、実施例 1、2 では、拡散層にガスバリア層を形成することで、ガスの整流を実現することができたためと考えられる。

比較例 2 と実施例 1、2 を比較すると実施例 1、2 で圧力損失が低くなっている。しかし、ガスの整流作用により、比較例 2 と同等以上に水が効果的に排出されることが確認されている。したがって、実施例 1、2 では、

低圧力で比較例 2 と同等の発電性能が得られる。

実施例 3、比較例 3、4

実施例 3 は燃料極側の拡散層にシリコーン製ポリマーをガスバリアとして形成したものを用いて、実施例 3 はセパレータの溝深さを 100% (0.5 mm 深さ)としたものを製作した。

比較例 3、4 は拡散層をそのまま用いて、比較例 3 はセパレータの溝深さを 100%、比較例 4 は溝深さを 50% としたものを用いて燃料電池を作製した。

図 8 は燃料極側のガス流量と圧力損失の関係を示したグラフである。

比較例 3 と比較例 4 とを実施した場合、溝深さを 100% から 50% にすることによって圧力損失が一定流量に対して劇的におおきくなり水を効果的に除去することができた。

図 8 で比較例 3 と実施例 3 を比較すると、実施例 3 では、セパレータの溝深さを減少させることなく圧力損失が得られている。これは、拡散層に 15 ガスバリア層を形成することで、ガスの整流を実現することができるためと思われる。

比較例 4 と実施例 3 を比較すると実施例 3 ででは、圧力損失が低くなっている。しかし、実際に発電評価を行った結果、比較例な条件時と同じ発電電圧が得られることより、水が効果的に排出されることが確認されてい 20 る。これは、ガスバリアによるガスの整流作用のためであると考えられる。このように、低圧力で比較例 4 と同等の発電性能が得られる。

実施例 4、比較例 5、6

図 9 は各燃料電池における燃料極側の圧力損失（燃料流量と 1 対 1 対応）と電圧の関係を示している。

実施例 4 は空気極側に実施例 1、燃料極側に実施例 2 の構成、比較例 5

は空気極側に比較例 1、燃料極側に比較例 1 の構成、比較例 6 は空気極側に比較例 2、燃料極側に比較例 4 の構成として燃料電池を組み立てた。

比較例 5 の様に燃料極、空気極側共に圧力損失が大きなもの(比較例 6 に比べて溝深さが 50 %)では、圧力損失が比較的低いところで安定した高電圧を得ることができる。これは少ないガス流量でも圧力損失がつくこと、ガス量が少ないために水蒸気の持ち込みが減少し、排出しなければ行けない水分が減少することによるものと考えられる。

比較例 6 の様に燃料極、空気極側共に圧力損失が小さな条件では安定した高電圧を得ることが出来ず、安定した高電圧を得るためには圧力損失を大きくすることが必要であり、大量のガスを供給しなければ行けないことが了解される。

一方、実施例 4 では比較例 5、6 に対して非常に少ないガス流量で最高電圧が得られる。これは拡散層のガスバリア層の整流作用により燃料電池内の水が効率よく排出されるため、また、燃料ガスに含まれる不活性ガス (N_2) が燃料電池内に滞留するのを防ぎ、燃料電池内の水素濃度が適性に保たれているためだと考えられる。

本発明に係るガスバリアを設けることにより、供給される燃料ガス流量を (L_A [$1/m\cdot min$]) と固体高分型燃料電池で圧力損失 (ΔP_A [$kg\cdot f/cm^2$]) とが $\Delta P_A \leq 0.2 \times L_A$ の範囲にあり、同様にこの固体高分子型燃料電池に供給される酸化剤ガス流量 (L_c [$1/m\cdot min$]) と固体高分型燃料電池で圧力損失 (ΔP_c [MPa]) とが $\Delta P_c \leq 0.1 \times L_c$ の範囲であっても、好適にセル中に水が滞留するのを回避し、セル面内で均一な発電をなしえるとともに、除水も効率的になしえる。

ここで、燃料ガス流量に関する $\Delta P_A \leq 0.2 \times L_A$ の条件は、図 8 の実施例 3 の結果から、実施例 3 の直線よりも下の範囲で、運転できる最低圧

損の境界が了解されることから導かれる条件である。

また、酸化剤ガス量に関する $\Delta P_c \leq 0.1 \times L_c$ の条件は、図 7 の実施例 1 の直線よりも下の範囲で、運転できる最低圧損の境界が了解されることから導かれる条件である。

5 実施例 5

ガス透過速度が異なるカーボンペーパの表面にカーボンブラックとポリテトラフルオロエチレンとからなるスラリ層を形成し、これにセパレータの溝と同様の形状にシリコーンゴムを用いてスリットを製作した。このガス拡散層を用いて発電試験を行い、拡散層のガス透過速度と発電電圧の関係を図 10 に示す。ガス透過速度が $1.5 \times 10^{-4} [\text{m/s/Pa}]$ 以下になると、発電電圧が低下し始めて $0.75 \times 10^{-4} [\text{m/s/Pa}]$ では約 10 [%] の電圧低下が見られ、 $0.38 \times 10^{-4} [\text{m/s/Pa}]$ では 37 [%] の電圧低下となった。このことより拡散層のガス透過速度は $1.5 \times 10^{-4} [\text{m/s/Pa}]$ 以上であることが好適である。

15 実施例 6

平均気孔率が異なるカーボンペーパの表面にカーボンブラックとポリテトラフルオロエチレンとからなるスラリ層を形成し、これにセパレータの溝と同様の形状にシリコーンゴムを用いてスリットを製作した。このガス拡散層を用いて発電試験を行い、拡散層のガス透過速度と発電電圧の関係を調べた結果を図 11 に示す。平均気孔率が 40 [%] 以下になると、発電電圧が低下し始めて、平均気孔率 35 [%] では約 20 [%] の電圧低下が見られ、平均気孔率 20 [%] では 35 [%] の電圧低下となった。このことより拡散層の平均気孔率は 40 [%] 以上、好適には 45 [%] 以上である。

25 ここで、試験に用いたセパレータは溝幅 1.0 [mm]、畠部幅 1.0 [m]

m]、溝深さ 0.3 [mm] であった。この寸法は電気化学的性能と電極を支持するための機械的強度条件との釣り合いから決定されるものであり、用途によって、以下の表1のように選択することができる。表1から了解されるように、望ましい溝幅は 0.5~2.5 [mm]、溝畠部分の幅 5 は 0.5~2.5 [mm]、溝深さは 0.2~3.0 [mm] である。

表 1

溝形状と発電性能

Run	電極面積 [cm ²]	電流密度 [A/cm ²]	溝幅 [m]	畠幅 [m]	深さ [mm]	長さ [m]	電極縦長さ [m]	圧損 [mmAq]	発電性
1	1600	1	5.0E-04	2.5E-03	3	2.0E+00	0.4	802	良好
2	1600	0.5	5.0E-04	2.5E-03	3	2.8E+00	0.4	786	良好
3	1600	1	2.5E-03	2.5E-03	1	1.2E+00	0.4	452	良好
4	1600	0.2	5.0E-04	2.5E-03	1	2.0E+00	0.4	692	良好
5	1600	1	2.5E-03	2.5E-03	0.2	4.0E-01	0.4	5018	良好
6	1600	0.2	5.0E-04	5.0E-04	0.2	4.0E-01	0.4	337	良好
7	300	1	5.0E-04	2.5E-03	3	1.6E+00	0.17	487	良好
8	300	1	2.5E-03	2.5E-03	1	8.7E-01	0.17	236	良好
9	300	0.2	5.0E-04	2.5E-03	1	1.6E+00	0.17	421	良好
10	300	1	5.0E-04	5.0E-04	0.2	1.7E-01	0.17	316	良好
11	300	0.2	5.0E-04	5.0E-04	0.2	1.7E-01	0.17	63	良好
12	150	1	2.5E-03	2.5E-03	1	8.6E-01	0.12	231	良好
13	150	0.5	5.0E-04	2.5E-03	1	6.1E-01	0.12	162	良好
14	150	1	2.5E-03	2.5E-03	0.2	1.2E-01	0.12	470	良好
15	150	0.2	5.0E-04	5.0E-04	0.2	1.2E-01	0.12	32	良好
16	25	1	5.0E-04	2.5E-03	1	3.5E-01	0.05	106	良好
17	25	1	2.5E-03	2.5E-03	0.2	5.0E-02	0.05	78	良好
18	25	0.2	5.0E-04	5.0E-04	0.2	1.5E-01	0.05	47	良好

なお、表1で、Run は、試験番号を表わし、例えば、Run1 は、試験番号 10 1 で、0.5 mm の溝幅、2.5 mm の畠幅、2.0 m の長さであること

を意味する。

以上、本発明の保護範囲は、上記の実施の形態例に限定されるものではなく、特許請求の範囲に記載された発明とその均等物にまで及ぶものである。

5

産業上の利用可能性

以上、本発明によれば、拡散層の少なくとも一部に、主面方向へのガスの透過を阻止するガスバリアを設けた構成とすることにより、セル中に水が滞留するのを回避し、セル面内で均一な発電をなしえるとともに、除水も効率的になしえる固体高分子型燃料電池を提供することができる。

10

請 求 の 範 囲

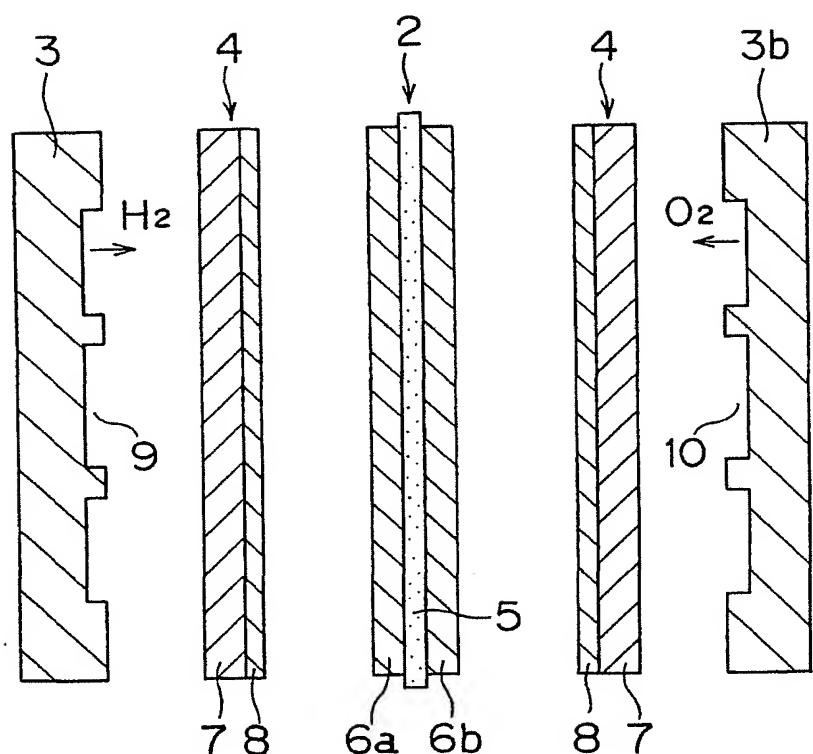
1. 固体高分子膜を有したセルと、このセルを両側から挟むセパレータと、前記セルとセパレータ間に配置された、導電性多孔質材料からなる基材および該基材上のスラリー層を有した拡散層とを具備し、前記拡散層の少なくとも一部に、主面方向へのガスの透過を阻止するガスバリアを設けた固体高分子型燃料電池。
2. 前記ガスバリアを、ガスバリア形成予定部に対応する前記基材を除去し、その除去部分に配置されたゴムまたは樹脂によるガス不透過材料層とした請求項1記載の固体高分子型燃料電池。
3. 前記ガスバリアを、ガスバリア形成予定部に対応する前記セパレータを周囲より厚み方向に突出させて突出部を形成し、この突出部に位置する前記導電性多孔材料層を周囲と比べ圧縮して得られる圧縮層とした請求項1記載の固体高分子型燃料電池。
4. 前記ガスバリアを、ガスバリア形成予定部に対応する前記セパレータに含浸して気密性を保持した樹脂含浸層とした請求項1記載の固体高分子型燃料電池。
5. 前記導電性多孔質材料からなる基材を、カーボンペーパ、カーボンクロス、カーボン不織布のいずれかにフッ素樹脂を撥水処理してなる構成とした請求項1～4のいずれかに記載の固体高分子型燃料電池。
6. 前記拡散層の界面エネルギーは、 $1 \times 10^{-3} \sim 5 \times 10^{-2} \text{ N/m}$ とした請求項1～5のいずれかに記載の固体高分子型燃料電池。
7. 供給される燃料ガス流量を $L_A [1/\text{min}]$ と、圧力損失 $\Delta P_A [kgf/cm^2]$ とが、 $\Delta P_A \leq 0.2 \times L_A$ の範囲にあり、供給される酸化剤ガス流量 $L_c [1/\text{min}]$ と、圧力損失を $\Delta P_c [kgf/cm^2]$ とが $\Delta P_c \leq 0.1 \times L_c$ の範囲にあるようにした請求項1～6のいずれかに

記載の固体高分子型燃料電池。

8. 前記拡散層のガス透過速度を $1.5 \times 10^{-4} \text{ cm/s/Pa}$ 以上とした請求項 1 ~ 7 のいずれかに記載の固体高分子型燃料電池。

9. 前記拡散層の平均気孔率を 45 % 以上とした請求項 1 ~ 8 のいずれかに記載の固体高分子型燃料電池。
5

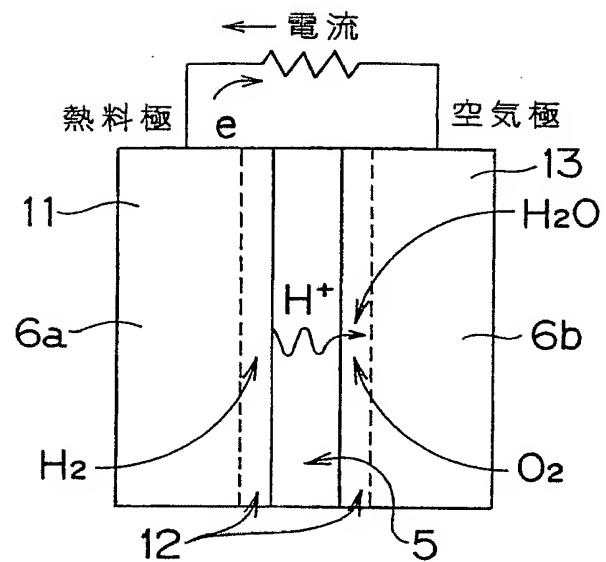
FIG. 1



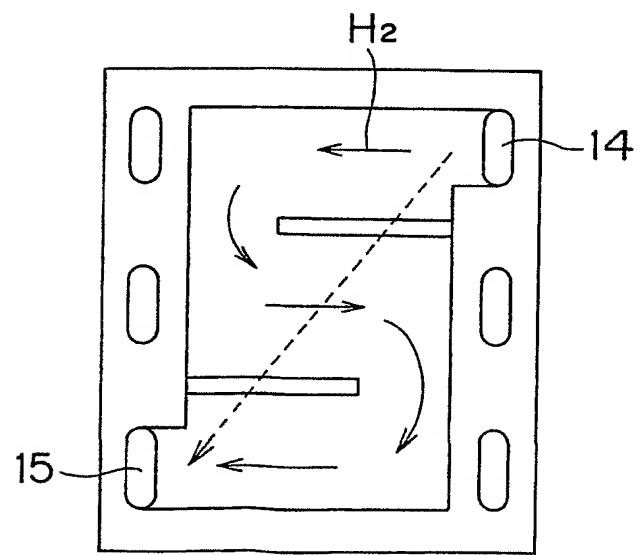
1

2/6

F I G. 2



F I G. 3



3/6

FIG. 4(a)

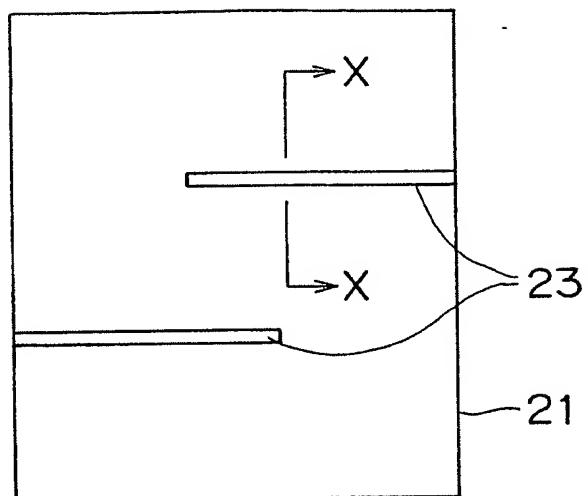


FIG. 4(b)

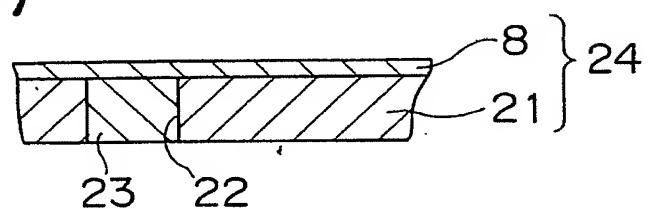


FIG. 5

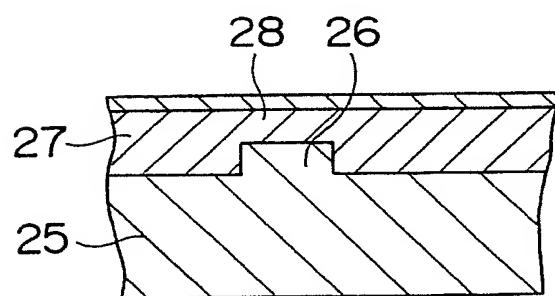
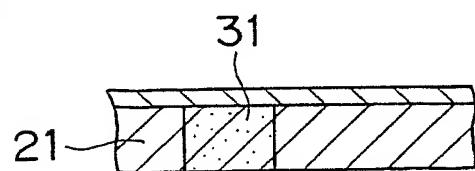


FIG. 6



4/6

FIG. 7

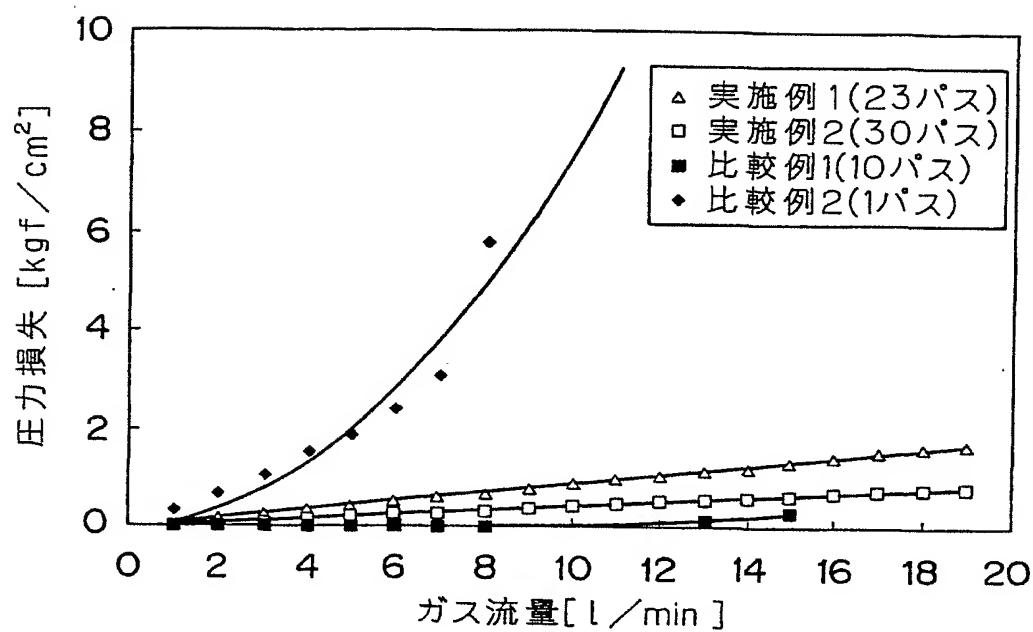
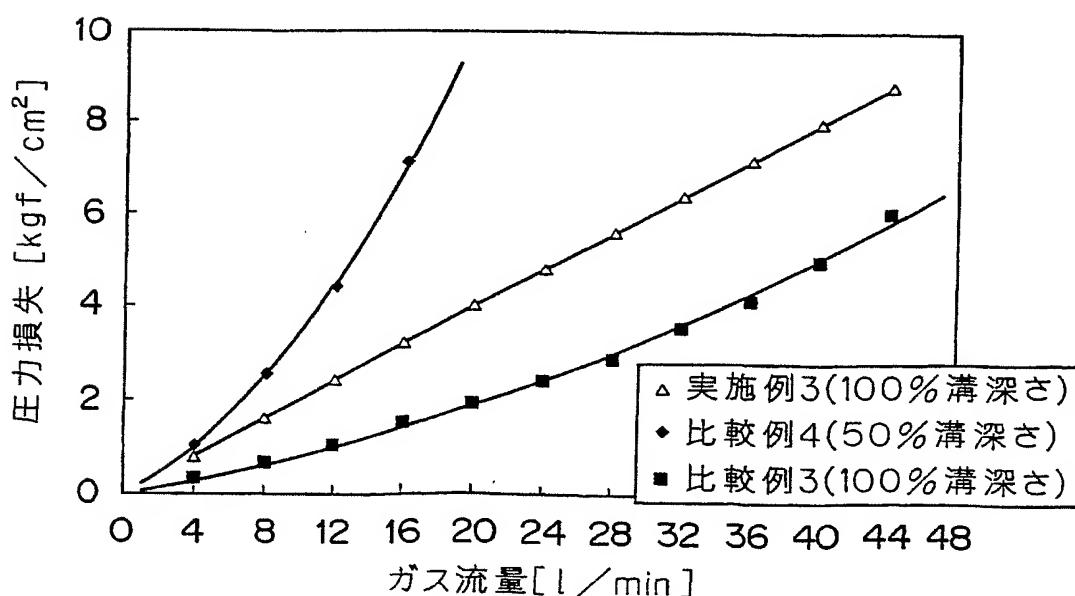
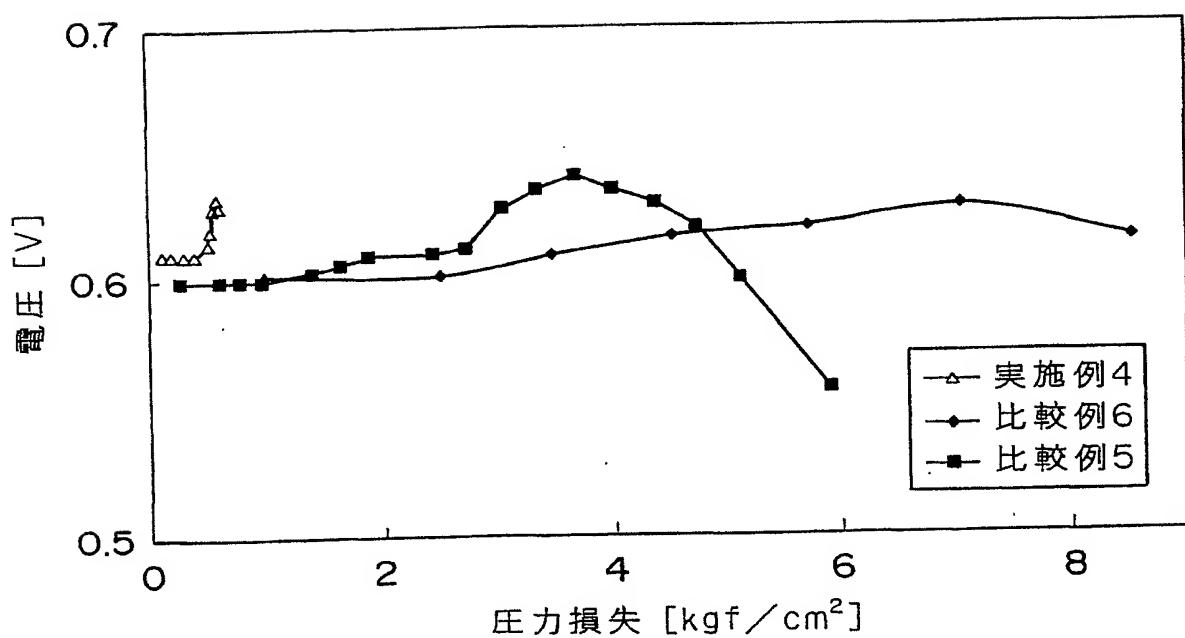


FIG. 8



5 / 6

F I G. 9



6/6

FIG. 10

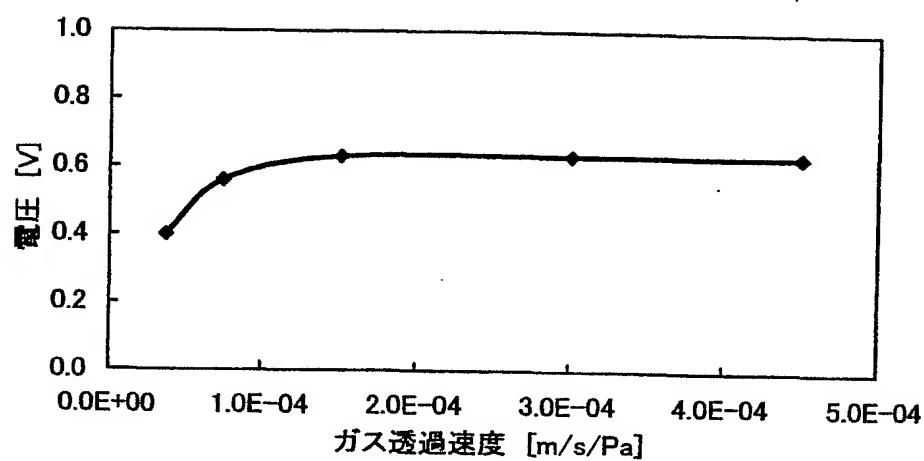
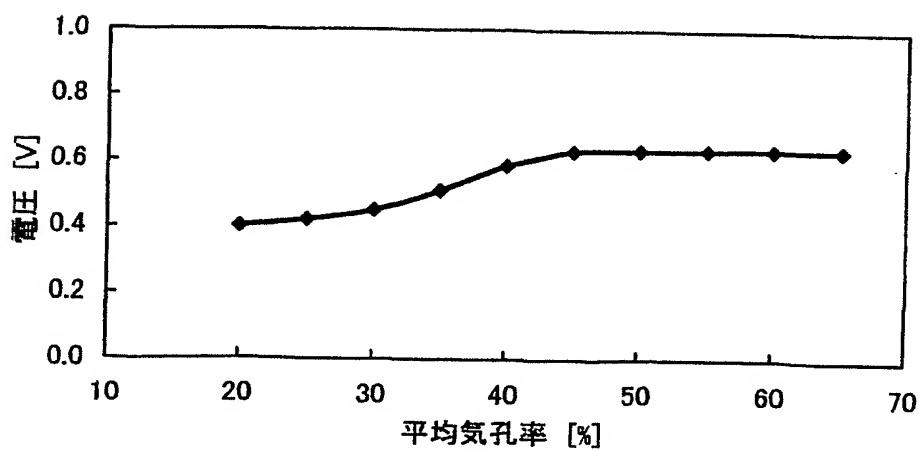


FIG. 11



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/08103

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ H01M8/02, H01M8/10, H01M4/86

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ H01M8/02, H01M8/10, H01M4/86

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2001
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2001 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2001

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
WPI/L

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 9-265992 A (Mazda Motor Corporation), 07 October, 1997 (07.10.97), Claims; Par. Nos. [0009] to [0013]; Fig. 1 (Family: none)	1-9
Y	JP 62-73570 A (Toshiba Corporation), 04 April, 1987 (04.04.87), Claims; page 2, upper right column, line 16 to page 3, upper left column, line 17; Figs. 1 to 2 (Family: none)	1-9
Y	JP 2-226663 A (Toray Industries, Inc.), 10 September, 1990 (10.09.90), Claims; page 6, upper right column, line 13 to page 7, upper left column, line 20; Figs. 1 to 10 (Family: none)	2, 4-9
Y	JP 8-45517 A (Tanaka Kikinzoku Kogyo K.K.), 16 February, 1996 (16.02.96), Claims; Par. No. [0006]; Fig. 2 (Family: none)	3, 5-9

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	"&" document member of the same patent family
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
04 October, 2001 (04.10.01)

Date of mailing of the international search report
16 October, 2001 (16.10.01)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. C17 H01M8/02, H01M8/10, H01M4/86

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. C17 H01M8/02, H01M8/10, H01M4/86

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996
日本国公開実用新案公報	1971-2001
日本国登録実用新案公報	1994-2001
日本国実用新案登録公報	1996-2001

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP 9-265992 A (マツダ株式会社), 7. 10月. 1 997 (07. 10. 97), 【特許請求の範囲】、【0009】 -【0013】、【図1】、(ファミリーなし)	1-9
Y	JP 62-73570 A (株式会社東芝), 4. 4月. 198 7 (04. 04. 87), 特許請求の範囲, 第2頁右上欄第16行 -第3頁左上欄第17行, 第1-2図, (ファミリーなし)	1-9

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

04. 10. 01

国際調査報告の発送日

16.10.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

原 賢一

(印)

4X

2930

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

C (続き)、関連すると認められる文献		関連する 請求の範囲の番号
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	
Y	JP 2-226663 A (東レ株式会社), 10. 9月. 1990 (10. 09. 90), 特許請求の範囲, 第6頁右上欄第13行-第7頁左上欄第20行, 第1-10図, (ファミリーなし)	2, 4-9
Y	JP 8-45517 A (田中貴金属工業株式会社), 16. 2月. 1996 (16. 02. 96), 【特許請求の範囲】, 【0006】, 【図2】, (ファミリーなし)	3, 5-9